

EPOXY RESIN COMPOSITION, EPOXY RESIN VARNISH, EPOXY RESIN PREPREG AND MULTILAYER PRINTED WIRING BOARD MADE BY USING THIS EPOXY RESIN PREPREG AS PREPREG FOR BONDING

Patent number: JP10158472
Publication date: 1998-06-16
Inventor: SUGIMURA TAKESHI; NEGISHI HARUKI
Applicant: HITACHI CHEMICAL CO LTD
Classification:
- international: **B32B15/08; C08J5/24; C08K13/02; C08L47/00; C08L63/00; C09D163/00; C09J163/00; H05K1/03; H05K3/46; B32B15/08; C08J5/24; C08K13/00; C08L47/00; C08L63/00; C09D163/00; C09J163/00; H05K1/03; H05K3/46; (IPC1-7): C08L63/00; B32B15/08; C08J5/24; C08K13/02; C08L47/00; C09D163/00; C09J163/00; H05K1/03; H05K3/46; C08K3/10; C08K3/22; C08K5/56; C08K13/02**
- european:
Application number: JP19960318364 19961128
Priority number(s): JP19960318364 19961128

Report a data error here

Abstract of JP10158472

PROBLEM TO BE SOLVED: To improve the resin flow when a large quantity of an inorganic filler such as barium titanate is blended with a resin composition comprising a blend of an epoxy resin and a phenol adduct of a diene polymer. **SOLUTION:** The essential components used comprise 100 pts.wt. resin component consisting of an epoxy resin, a phenol adduct of a diene polymer and a cure accelerator, 180-250 pts.wt. inorganic filler having a relative permittivity of at least 10, and a titanate coupling agent in an amount of 0.1-0.6 pt.wt. based on 100 pts.wt. of the inorganic filler. The solvent used for making the varnish comprises a mixture of at least one solvent having a boiling point of 50-90 deg.C and at least one solvent having a boiling point of 110-160 deg.C.

Data supplied from the *esp@cenet* database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-158472

(43) 公開日 平成10年(1998) 6月16日

| (51) Int.Cl. ⁹ | 識別記号 | F I | |
|---------------------------|-------|---------------|---------|
| C 0 8 L 63/00 | | C 0 8 L 63/00 | A |
| | | | C |
| B 3 2 B 15/08 | 1 0 5 | B 3 2 B 15/08 | 1 0 5 A |
| C 0 8 J 5/24 | C F C | C 0 8 J 5/24 | C F C |
| C 0 8 K 13/02 | | C 0 8 K 13/02 | |

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 7 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平8-318364

(22) 出願日 平成 8 年(1996) 11月28日

(71) 出願人 000004455

日立化成工業株式会社

東京都新宿区西新宿 2 丁目 1 番 1 号

(72) 発明者 杉村 猛

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成
工業株式会社下館工場内

(72) 発明者 根岸 春巳

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成
工業株式会社下館工場内

(74) 代理人 弁理士 廣瀬 章

(54) 【発明の名称】 エポキシ樹脂組成物、エポキシ樹脂ワニス、エポキシ樹脂プリプレグ及びこのエポキシ樹脂プリプレグを接着用プリプレグとした多層プリント配線板

(57) 【要約】

【課題】 エポキシ樹脂とフェノール類付加ジエン系重合体とを配合した樹脂組成にチタン酸バリウムのような無機充填剤を多量に配合したときの樹脂流れを改善する。

【解決手段】 エポキシ樹脂、フェノール類付加ジエン系重合体、及び、硬化促進剤からなる樹脂成分 100 重量部、比誘電率 10 以上の無機充填剤 180～250 重量部、並びに、比誘電率 10 以上の無機充填剤 100 重量部に対して 0.1～0.6 重量部のチタネート系カップリング剤を必須成分とし、ワニスとするときの溶剤として、沸点が 50～90℃の溶剤少なくとも 1 種類及び沸点が 110～160℃の溶剤少なくとも 1 種類を混合してなる溶剤を用いる。

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 エポキシ樹脂、フェノール類付加ジエン系重合体、及び、硬化促進剤からなる樹脂成分100重量部、比誘電率10以上の無機充填剤180～250重量部、並びに、比誘電率10以上の無機充填剤100重量部に対して0.1～0.6重量部のチタネート系カップリング剤を必須成分として含有してなるエポキシ樹脂組成物。

【請求項2】 請求項1記載のエポキシ樹脂組成物を溶剤に溶解、分散させてなるエポキシ樹脂ワニス。

【請求項3】 溶剤が、標準沸点が異なる少なくとも2種類の溶剤を混合してなる溶剤である請求項2記載のエポキシ樹脂ワニス。

【請求項4】 請求項2又は3に記載のエポキシ樹脂ワニスを繊維基材に含浸、乾燥して得られるエポキシ樹脂プリプレグ。

【請求項5】 請求項4に記載のプリプレグを配線板相互間又は配線板と金属はくとの接着用プリプレグとしてなる多層プリント配線板。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、エポキシ樹脂組成物、エポキシ樹脂ワニス、エポキシ樹脂プリプレグ及びこのエポキシ樹脂プリプレグを接着用プリプレグとした多層プリント配線板に関するものである。

【0002】

【従来の技術】多層プリント配線板は、両面又は片面プリント配線板及び銅はくを構成材とし、構成材相互間をフィルムないしシート状接着剤で接着している。フィルムないしシート状接着剤としては、繊維基材にエポキシ樹脂ワニスを含浸乾燥した接着用プリプレグが主に用いられている。プリプレグの性質を改良するため、エポキシ樹脂にフェノール類付加ジエン系重合体を配合することも行われている。多層プリント配線板の接着用プリプレグとして、耐熱性、耐薬品性、寸法安定性、難燃性、成形温度等を考慮して、この組合せを用いるのが好ましいとされている。

【0003】エレクトロニクス製品、とりわけ情報通信機器分野のような高周波回路に使用されるプリント配線板には、各種の誘電特性を備えることが要求されるようになっている。最も重要な誘電特性は誘電正接である。高周波回路において、誘電体損失を小さくするためには誘電正接が小さい材料を選択する必要がある。現在高周波回路用プリント配線板の材料として、無機材料としては、アルミナセラミックスやガラスセラミックスなどが用いられ、有機樹脂材料としては、フッ素樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、エポキシ樹脂などが用いられている。有機樹脂材料のうちでも、フッ素樹脂やポリフェニレンエーテル樹脂は、成形が難しい。プリント配線板の用途によっては、高誘電率であることが必要とされ

2

る。多層プリント配線板の製造においては、接着用プリプレグに高誘電率の材料を用いるのが望ましい。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】誘電率は、物質固有の値であるから、エポキシ樹脂を主な構成成分とする材料の誘電率を高くするためには、比誘電率が高いチタン酸バリウムのような無機充填剤を多量に添加する。ところが、エポキシ樹脂とフェノール類付加ジエン系重合体とを配合した樹脂組成にチタン酸バリウムのような無機充填剤を多量に配合すると、樹脂流れが悪くなる。本発明は、エポキシ樹脂とフェノール類付加ジエン系重合体とを配合した樹脂組成にチタン酸バリウムのような無機充填剤を多量に配合したときの樹脂流れを改善することを第1の課題とする。

【0005】また、エポキシ樹脂とフェノール類付加ジエン系重合体とを配合した樹脂組成は元来高粘度であるうえ、これに無機充填剤を配合したワニスは一層高粘度となる。このため、通常より多量の溶剤を必要とする。標準沸点（標準気圧における沸点をいう、以下単に沸点という）が低い溶剤を用いると、プリプレグ製造中に溶剤の揮発により発泡してプリプレグ表層にボイドができることがある。また、沸点が高い溶剤を用いると、溶剤が残留して、多層プリント配線板としたときの耐熱性が悪くなることがある。そこで、本発明は、エポキシ樹脂とフェノール類付加ジエン系重合体とを配合した樹脂組成にチタン酸バリウムのような無機充填剤を多量に配合したワニスをを用いてプリプレグを製造するときに、プリプレグ表層のボイド発生や、溶剤残留をなくすることを第2の課題とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は、エポキシ樹脂、フェノール類付加ジエン系重合体、及び、硬化促進剤からなる樹脂成分100重量部、比誘電率10以上の無機充填剤180～250重量部、並びに、比誘電率10以上の無機充填剤100重量部に対して0.1～0.6重量部のチタネート系カップリング剤を必須成分として含有してなるエポキシ樹脂組成物である。

【0007】比誘電率10以上の無機充填剤（以下単に無機充填剤という）の比誘電率が10未満であると、高誘電率とするために極めて多量の配合を必要とし実用的でない。無機充填剤の配合量は、無機充填剤固有の比誘電率と製品において要求される比誘電率の値によって定められるが、エポキシ樹脂、フェノール類付加ジエン系重合体、及び、硬化促進剤からなる樹脂成分100重量部に対する配合量が180重量部未満であると、比誘電率を高くする効果が小さい。またこの配合量が250重量部を超えるとワニスとして必要な樹脂流れが得られない。

【0008】シラン系カップリング剤も樹脂流れの改善に有効であるが、チタネート系カップリング剤よりも多

10

20

30

40

50

3

量に配合しないと改善効果が得られず、そうすると耐熱性が阻害されるので好ましくない。チタネート系カップリング剤の配合量が、無機充填剤100重量部に対して0.1重量部未満であると、樹脂流れ改善の効果がなく、0.5重量部を超えて配合しても、樹脂流れ改善の効果には変わりなく、却って耐熱性や板厚精度を阻害する。このような観点から、チタネート系カップリング剤の配合量は、無機充填剤100重量部に対して0.1~0.2重量部とするのがさらに好ましい。

【0009】本発明のエポキシ樹脂組成物は、溶剤に溶解、分散させてエポキシ樹脂ワニスとして好適に使用される。エポキシ樹脂にフェノール類付加ジエン系重合体を配合してワニスとすると、高粘度となり、これに多量の無機充填剤を配合すると、一層高粘度になる。低沸点の溶剤を1種類単独で用いたワニスを基材に含浸、乾燥すると、沸点付近で、表面から溶剤が一時に激しく揮発し、発泡による表層ポイドを発生することがある。また、高沸点の溶剤を1種類単独で用いたワニスを基材に含浸、乾燥すると、溶剤残留量が多くなって、積層接着後の耐熱性が低下することがある。そこで、ワニスの溶剤として、標準沸点が異なる少なくとも2種類の溶剤を混合してなる混合溶剤を用いると、溶剤の揮発が分散され、発泡と溶剤残留量を共に少なくできるので好ましい。

【0010】本発明者は、混合溶剤について種々検討し、ワニスの溶剤としては、標準沸点（以下単に沸点という）が異なる少なくとも2種類の溶剤を混合してなる溶剤を用いるのが好ましいことを見いだした。なかでも、沸点が50~90℃の溶剤を少なくとも1種類及び沸点が110~160℃の溶剤を少なくとも1種類を混合してなる溶剤を用いるのがさらに好ましい。このときの混合比は、重量比で、沸点が50~90℃の溶剤6~1、沸点が110~160℃の溶剤4~9とするのが好ましく、沸点が50~90℃の溶剤5~2、沸点が110~160℃の溶剤5~8とするのがさらに好ましい。

【0011】以上説明した本発明のエポキシ樹脂ワニスを繊維基材に含浸、乾燥してエポキシ樹脂プリプレグとする。このエポキシ樹脂プリプレグは、多層プリント配線板の構成材（単位配線板及び金属はくをいう）相互間の接着用プリプレグとして、好適に用いられる。このほか、積層板製造用プリプレグとしても使用可能である。

【0012】

【発明の実施の形態】本発明で用いられるエポキシ樹脂としては、2官能以上のエポキシ樹脂であればよく、その種類は特に限定されない。例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビフェノール型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールAノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールFノボラック型

4

エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、脂肪族鎖状エポキシ樹脂、グリシジルエステル型エポキシ樹脂、グリシジルアミン型エポキシ樹脂、ヒダントイン型エポキシ樹脂、イソシアヌレート型エポキシ樹脂、サリチルアルデヒドノボラック型エポキシ樹脂、その他二官能フェノール類のジグリシジルエーテル化物、二官能アルコール類のジグリシジルエーテル化物、並びにこれらのハロゲン化物などが挙げられる。場合によりこれらの何種類かを併用してもよい。なかでも、難燃性を付与する点から、ハロゲン化物が好ましい。

【0013】フェノール類付加ジエン系重合体は、ジエン系重合体、例えば、ポリブタジエンにフェノール類を付加させたものである。フェノール類付加ジエン系重合体としては、市販品を使用することができる。ジエン系重合体に付加させるフェノール類としては、フェノール、*o*-クレゾール、*m*-クレゾール、*p*-クレゾール、エチルフェノール、プロピルフェノール、ブチルフェノール、*tert*-ブチルフェノール、アミルフェノール、ヘキシルフェノール等の単官能フェノール類、ヒドロキノン、レゾルシノール、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビフェノール等の二官能フェノール、これらの異性体、ハロゲン化物、ピロガロール、ヒドロキシヒドロキノン、フロログルシノール、フェノールノボラック、クレゾールノボラック、ビスフェノールA型ノボラック等の多官能フェノール類などが挙げられ、これらは単独で用いても、2種類以上併用してもよい。

【0014】本発明で用いられるフェノール類付加ジエン系重合体としては、ジエン系重合体100gに対するフェノール類の付加量を、フェノール性水酸基が0.1~1.0mol量になるように調整したものが好ましく、特に0.25mol以下が好ましい。フェノール類の付加量が1.0molを超えると誘電正接が大きくなり、0.1mol未満であると、耐熱性が低下する傾向にある。

【0015】本発明で用いられる硬化促進剤としてはイミダゾール化合物、有機リン化合物、第3級アミン、第4級アンモニウム塩等が用いられるが、第2級アミノ基をアクリロニトリル、イソシアネート、メラミン、アクリレート等でマスクしたイミダゾール化合物を用いるとプリプレグの保存安定性がよく好ましい。

【0016】ここで用いられるイミダゾール化合物としては、イミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、1-ベンジル-2-メチルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、4,5-ジフェニルイミダゾール、2-メチルイミダゾリン、2-メチル-4-メチルイミダゾリン、2-フェニルイミダゾリン、2-ウンデシルイミダゾリン、2-ヘプタデシルイミダゾリン、2-イソプロピルイミダゾール、2,4-ジメチル

10

20

30

40

50

5

イミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、2-エチルイミダゾリン、2-イソプロピルイミダゾリン、2, 4-ジメチルイミダゾリン、2-フェニル-4-メチルイミダゾリンなどが挙げられ、マスク化剤としてはアクリロニトリル、フェニレンジイソシアネート、トルエンジイソシアネート、ナフタレンジイソシアネート、メチレンビスフェニルイソシアネート、メラミンアクリレートなどが挙げられる。

【0017】エポキシ樹脂、フェノール類付加ジエン系重合体及び硬化促進剤は、エポキシ樹脂100重量部に対して、フェノール類付加ジエン系重合体80~120重量部、硬化促進剤0.2~1.0重量部の割合で配合されるのが好ましい。また、エポキシ樹脂100重量部に対して、フェノール類付加ジエン系重合体90~110重量部、硬化促進剤0.4~0.6重量部配合されるのが特に好ましい。フェノール類付加ジエン系重合体の配合量が80重量部未満であると誘電正接が高くなり、120重量部を超えると耐熱性が低下する傾向を示し、また、硬化促進剤の配合量が0.2重量部未満であると硬化促進の作用が小さくなり、1.0重量部を超えると

ワニスの保存安定性を損なう傾向を示すからである。

【0018】本発明で用いられる無機充填剤としては、二酸化チタン系セラミック、チタン酸バリウム系セラミック、チタン酸鉛系セラミック、チタン酸ストロンチウム系セラミック、チタン酸カルシウム系セラミック、チタン酸ビスマス系セラミックチタン酸マグネシウム系セラミック、ジルコン酸鉛系セラミック等が挙げられ、また形状としては粒状、不定形又はフレーク状など特に制限はない。焼成したものをを用いると、誘電率が高く、誘電正接が低くなるので好ましいが、比誘電率が10以上

【0019】本発明で用いられるチタネート系カップリング剤としては、アシレート型、ホスフェート型、アルコラート型、コーディネート型、モノアルコキシ型、テトラアルコキシ型、亜リン酸エステル付加コーディネート型などを挙げることができる。これらのチタネート系カップリング剤は、市販品を用いることができる。チタネート系カップリング剤の中でも、ホスフェート型がフェノール類付加ジエン系重合体との親和性が良く、樹脂流動性を増加させることができることから好ましい。

【0020】エポキシ樹脂ワニスにするときの溶剤としては、アルコール系、エーテル系、ケトン系、アミド系、芳香族炭化水素系、エステル系、ニトリル系などが使用される。沸点が50~90℃の溶剤としては、メタノール、ノルマルヘキサン、酢酸エチル、アクリロニトリル、メチルエチルケトン、イソプロピルアルコールなどが挙げられ、これらを単独で又は何種類か混合して用いられる。沸点が110~160℃の溶剤としては、トルエン、メチルイソブチルケトン、エチレングリコール

6

モノメチルエーテル（セロソルブ）、エチレングリコールモノエチルアセテート（セロソロブアセテート）、ステレン、N, N-ジメチルホルムアミドなどが挙げられ、これらを単独で又は何種類か混合して用いられる。

【0021】エポキシ樹脂プリプレグに用いられる繊維基材としては、ガラスクロス、ガラス不織布が好ましい。ガラスの材質としては、電気用積層板に使用されているEガラス、Sガラス、Dガラス、Hガラスなどが使用できる。樹脂との密着性を高める目的で、繊維基材にシラン系カップリング剤を付着させて使用するのが好ましい。

【0022】エポキシ樹脂ワニスを、繊維基材に含浸、乾燥する方法については特に制限はなく、公知の方法が採用できる。繊維基材の厚さ及び樹脂の付着量についても、この種のプリプレグに用いられている範囲であればよく他に制限はない。これらは、用途などに応じて適宜選定される。乾燥するときの条件としては、例えば、乾燥炉で100~170℃、3~10分とされるが、特にこの条件に限られるものでもない。多層プリント配線板の構成材相互間に本発明のエポキシ樹脂プリプレグを挿み、例えば、温度175℃、圧力3MPaで30~120分間加熱加圧して、多層プリント配線板とされる。

【0023】

【実施例】

実施例1

臭素化エポキシ樹脂（住友化学工業株式会社製 ESB-400T（商品名）を使用した）100部（重量部、以下同じ）、フェノール類付加ポリブタジエン（ポリブタジエン100gに対するフェノール付加量0.25mol、水酸基当量410）105部を、メチルグリコールモノメチルエーテル（沸点124℃）、メチルエチルケトン（沸点79.6℃）及びN, N-ジメチルホルムアミド（沸点153℃）を重量比で4:4:2の割合に混合した混合溶剤105部に溶解し、次ぎに、硬化促進剤としてイソシアネートマスクイミダゾールを0.4部を加えて溶解して溶液Aを得た。含まれる固形分100部に相当する溶液Aに、チタン酸ストロンチウム粉末（富士チタン工業株式会社製）200部を加えて均一に分散するように攪拌し、さらにチタネート系カップリング剤（味の素株式会社製、プレナクトKR-38S（商品名）を使用した）0.2部を添加し、全体が均一になるように攪拌してエポキシ樹脂ワニスを得た。

【0024】公称厚さ0.1mm、重量105g/m²のガラスクロス（日東紡績株式会社製 WEA116A（商品名）を使用した）に乾燥後の厚さが0.15mmになるように、得られたエポキシ樹脂ワニスを含浸し、170℃で3~5分間乾燥してエポキシ樹脂プリプレグを作製した。

【0025】厚さ0.3mm、銅はく厚さ35μmの両面銅張ガラス布基材エポキシ樹脂積層板（日立化成工業

10

20

30

40

50

7

株式会社製、MCL-E-67 (商品名) を使用した) に回路加工を行った両面プリント配線板2枚を用意した。この両面プリント配線板2枚の間に、得られたエポキシ樹脂プリプレグ2枚を挿み、温度175℃、圧力3MPaで40分間加熱加圧して、縦345mm、横515mmの4層プリント配線板を作製した。これとは別に、前記の両面銅張積層板から銅はくを全面エッチング除去したもの2枚を用いて、以下前記4層プリント配線板と同様にして誘電特性(比誘電率及び誘電正接)測定用積層板を作製した。

【0026】実施例2

臭素化エポキシ樹脂(大日本インキ化学工業株式会社製エピクロン153 (商品名) を使用した) 100部、実施例1と同じフェノール類付加ポリブタジエン105部を、メチルグリコールモノメチルエーテル(沸点124℃)及びメチルエチルケトン(沸点79.6℃)を重量比で8:2の割合に混合した混合溶剤105部に溶解し、次ぎに、硬化促進剤としてイソシアネートマスクイミダゾール0.6部を加えて溶解して溶液Bを得た。含まれる固形分100部に相当する溶液Bに、実施例1と同じチタン酸ストロンチウム粉末100部及びチタン酸カルシウム粉末(富士チタン工業株式会社製)100部を加えて均一に分散するように攪拌し、さらに実施例1と同じチタネート系カップリング剤0.1部を添加し、全体が均一になるように攪拌してエポキシ樹脂ワニスを得た。

【0027】以下実施例1と同様にしてエポキシ樹脂プリプレグ、4層プリント配線板及び誘電特性測定用積層板を作製した。

【0028】実施例3

臭素化エポキシ樹脂(東都化成株式会社製YDB-400 (商品名) を使用した) 100部、実施例1と同じフェノール類付加ポリブタジエン105部を、メチルイソブチルケトン(沸点115.8℃)及びメチルエチルケトン(沸点79.6℃)を重量比で5:5の割合に混合した混合溶剤に溶解し、次ぎに、硬化促進剤としてイソシアネートマスクイミダゾール0.5部を加えて溶解して溶液Cを得た。含まれる固形分100部に相当する溶液Cに、実施例1と同じチタン酸ストロンチウム粉末95部及び実施例2と同じチタン酸カルシウム粉末95部を加えて均一に分散するように攪拌し、さらに実施例1と同じチタネート系カップリング剤0.5部を添加

8

し、全体が均一になるように攪拌してエポキシ樹脂ワニスを得た。

【0029】以下実施例1と同様にしてエポキシ樹脂プリプレグ、4層プリント配線板及び誘電特性測定用積層板を作製した。

【0030】比較例1

チタネート系カップリング剤を配合しないほか実施例1と同様にした。

【0031】比較例2

10 チタネート系カップリング剤の配合量を1.6部としたほか実施例1と同様にした。

【0032】比較例3

チタネート系カップリング剤に代えてシラン系カップリング剤を用いたほか実施例1と同様にした。

【0033】比較例4

シラン系カップリング剤の配合量を5.0部としたほか比較例3と同様にした。

【0034】実施例4

20 溶剤をメチルエチルケトン単独としたほか実施例1と同様にした。

【0035】実施例5

溶剤をN,N-ジメチルホルムアミド単独としたほか実施例1と同様にした。

【0036】以上のようにして作製したプリプレグについて、樹脂流れ、揮発分及び硬化時間を以下に説明するようにして調べた。その結果を表1に示す。

【0037】樹脂流れ(JIS C 6521準拠) :

100mm角にカットした試料をステンレス鋼板の間に挟み、実施例1と同条件で加熱加圧し、試料の中央部を直径81.1mmの円板状に切取り、100mm角にカットした試料の質量(=W₀)と、加熱加圧後切取った円板状試料の質量(=W₁)から、樹脂流れ(%)=100×(W₀-2W₁)/W₀によって算出した。揮発分(JIS C 6521準拠) : 100mm角にカットした試料を160℃の恒温槽内に15分間つりさげ、加熱した。その後デシケーター中にて室温まで冷却する。恒温槽加熱前後の質量を測定してその差から揮発分を算出した。硬化時間(JIS C 6521準拠) : プリプレグから樹脂粉をもみ落し、これを170℃に調節した熱盤上に置き、ゲル化するまでの時間を測定した。

【0038】

【表1】

| | 実施例 | | | | | 比較例 | | | |
|---------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 1 | 2 | 3 | 4 |
| 樹脂流れ(%) | 13 | 10 | 15 | 12 | 13 | 3 | 18 | 5 | 13 |
| 揮発分(%) | 0.2 | 0.2 | 0.2 | 0.2 | 0.6 | 0.3 | 0.2 | 0.2 | 0.3 |
| 硬化時間(秒) | 92 | 103 | 82 | 105 | 188 | 65 | 152 | 98 | 178 |

9

【0039】また、4層プリント配線板について、吸湿はんだ耐熱性、板厚、基板外観、比誘電率及び誘電正接を以下に説明するようにして調べた。その結果を表2に示す。

【0040】吸湿はんだ耐熱性：常態、並びに、2026hPa、121℃、飽和水蒸気圧のプレッシャークックテストで2時間（PCT-2）及び4時間（PCT-4）それぞれ処理し、260℃のはんだ浴に20秒間浸漬した後の外観を目視で観察した。

耐熱性評価基準：5；異常無し、4；ミーズリング5個以下、3；ミーズリング散在、2；小ふくれ発生、1；ふくれ発生

【表2】

10

板厚：5枚のサンプルについて、1枚につき縦横等間隔に3点宛計9点の厚さをマイクロメータを用いて測定した。表2には測定値の幅を示した。

基板外観：4層プリント配線板の外層銅はくを、全面エッチングし、両面プリント配線板の間に挿まれたエポキシ樹脂層を観察し、かすれ及び発泡のないものを良好とした。

比誘電率及び誘電正接：周波数100MHzで測定した。

【0041】

【表2】

| | 実施例 | | | | | 比較例 | | | |
|----------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|
| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 1 | 2 | 3 | 4 |
| 吸湿はんだ耐熱性 | | | | | | | | | |
| 常態 | 555 | 555 | 555 | 555 | 555 | 555 | 555 | 555 | 555 |
| PCT-2 | 555 | 555 | 555 | 511 | 111 | 555 | 555 | 555 | 111 |
| PCT-4 | 555 | 555 | 555 | 111 | 111 | 555 | 511 | 555 | 111 |
| 板厚 | 0.98～ 1.26 | 0.97～ 1.25 | 0.97～ 1.28 | 1.01～ 1.21 | 1.08～ 1.25 | 1.10～ 1.34 | 0.86～ 1.26 | 1.10～ 1.26 | 0.97～ 1.28 |
| 基板外観 | 良好 | 良好 | 良好 | 良好 | 良好 | かすれ 発生 | 良好 | かすれ 発生 | 良好 |
| 比誘電率 | 10.54 | 10.58 | 10.55 | 10.46 | 10.63 | 10.53 | 10.54 | 10.54 | 10.60 |
| 誘電正接 | 0.0070 | 0.0069 | 0.0068 | 0.0073 | 0.0072 | 0.0070 | 0.0070 | 0.0072 | 0.0072 |

【0042】

【発明の効果】本発明によれば、エポキシ樹脂とフェノール類付加ジエン系重合体を配合した樹脂組成にチタン酸バリウムのような無機充填剤を多量に配合したエポキシ樹脂ワニス

さらに、請求項4の発明によれば、プリプレグ表層のボイド発生や、溶剤残留をなくすることができる。したがって、請求項5の発明によれば、耐熱性が良好な高誘電率多層プリント配線板を提供できる。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 6

C08L 47/00

C09D 163/00

C09J 163/00

識別記号

FI

C08L 47/00

C09D 163/00

C09J 163/00

H05K 1/03 610
3/46
//(C08K 13/02
3:22
3:10
5:56)

H05K 1/03 610Q
3/46 T